



TITLE:

木材の内部欠陥と超音波音速との関係

AUTHOR(S):

角谷, 和男

CITATION:

角谷, 和男. 木材の内部欠陥と超音波音速との関係. 木材研究 : 京都大學
木材研究所報告 1965, 34: 22-36

ISSUE DATE:

1965-03

URL:

<http://hdl.handle.net/2433/52962>

RIGHT:

木材の内部欠陥と超音波音速との関係*

角 谷 和 男**

Kazuo SUMIYA** : Relations between defects in wood and velocity of ultrasonic wave*

はじめに

建築材、電柱、原木の空孔、腐朽や合板、集成材の欠陥など、木材やその製品の欠陥は強度的にも問題になり、人命に関する場合もある。とくにこれらの欠陥が内部にある時は直接視覚的に発見できないため、材料、製品の原形や機能を全く変化させることなくこれらを比較的簡単に予知できるならば、非常に経済的にも有利である。ここにいわゆる非破壊検査法の確立が強調されるようになる。

材料の原形、機能を変化させないようにするため、非破壊検査には弾性波、放射線、電磁気などの物理的エネルギー流が用いられる。木材に対しては放射線の利用としてソフトX線による枕木の腐朽状態の検査¹⁾、 Co^{60} などより出る γ 線の透過量より電柱の腐朽位置を判定する方法²⁾、弾性波の利用としてペイント用はけを回転せしめ、その摩擦音より合板の欠陥部を発見する方法³⁾、超音波の減衰を測定し木材内部の空孔を見いだす方法⁴⁾、超音波の音速より弾性係数を計算する方法⁵⁾、電気的方法の利用としてQ値の測定より腐朽度を推定する方法⁶⁾、さらに弾性係数と強度の関係の利用として一定のわずかな撓みを与えるに要する力より素材板の応力等級を決める方法⁷⁾等が現在行なわれている。

筆者は主として建築物、電柱などの空孔、腐朽などの現場における非破壊的検出を目的として、超音波音速の内部欠陥による変化を実験的に求めた。超音波音速を選んだ理由は超音波の人体に対する障害のない点および内部欠陥に敏感な弾性波の減衰も測定器と被測定物との接触の良否に大きく左右される点を考慮したことによる。ここに筆者の実験結果を報告し、木材の非破壊検査法確立の一助とする次第である。

なお腐朽実験に際しての試料の作製および現場実験など木材生物研究部門西本助教授の多大の御援助と御助言をいただいたことを記し、ここに深く感謝の意を表する。

I 実験方法

I-1 測定器

超音波の発生、検出および試料中を伝播するに要する時間の測定には円井製作所製超音波伝播反射測定器を用い、同時に超音波伝播方向の試料厚さを測り、音速を計算する。超音波を発生する振動子および検出する受信子の振動数はチタン酸バリウム結晶の共振振動数を利用し、

* 第14回日本木材学会大会で発表

** 木材物理研究部門, Division of Wood Physics

それぞれ特有の共振振動数を持つ一対の振動子、受信子を準備する。本実験の振動子、受信子はすべて縦波用のものである。測定装置の系統図および配置を Fig. 1 に示す。

透過に要する時間はオシログラフ上にあらわれた受信信号と時間信号を用いて行なわれる。すなわち振動子と受信子を直接接触させた場合の受信パルス信号（発生パルスの繰返し数は 60 c/s）の立上りと時間パルス信号の原点とを一致せしめて後、振動子と受信子の間に試料をはさみ、試料による受信パルス信号の立上りの遅れを時間信号の原点からずれとして読む。時間信号の周期を変化せしめ、上述の遅れを時間信号の 1 あるいは 2 周期に一致することにより目盛板上で時間が読みとれるようになっている。

この測定誤差は主として試料中における音波の減衰による受信波の立上りの不明確さによつて左右される。ここに試料と測定器との接触の良否が問題となるが、減衰の測定の場合より非常に影響が少なく、接触の良否はほとんど無視できる。（本器によつても減衰は立上りの山の高さを測定することにより求められるが、接触の良否によつて波形は大きく変化する。）ただ内部欠陥の形状が大きい場合はそのための減衰によつて立上りがより不明確になるため、伝播時間を遅い方に読み取る場合が多くなる。

非破壊検査に使用する振動数は一般に高い程よいが、木材はその構成上仮道管、木繊維など繊維方向の長さ数 mm に達する細胞孔を含んでいるので、それによる減衰がはなはだしく、この減衰を少なくするには用いる波の波長を少なくともそれらの数倍以上にする必要があり、したがつて使用振動数は 100 kc/s 以下が適当と思われる。本実験には 20, 50, 100 kc/s の 3 対の振動子と受信子（各径 4 cm の円筒状のもの）を用いた。

なお試料と振動子、受信子の接触を良くするためグリースを塗り、スプリングで 2 kg 程度の圧力をかけた。

I-2 空孔の場合

木材内部に空孔のある場合を考え、人工的に試料に穿孔し、その大きさによる音速の変化を求めた。

(A) 実験 1

Fig. 2 に示されるようなスギ (*Cryptomeria japonica* D. Don) 角柱（平均気乾比重：0.35,

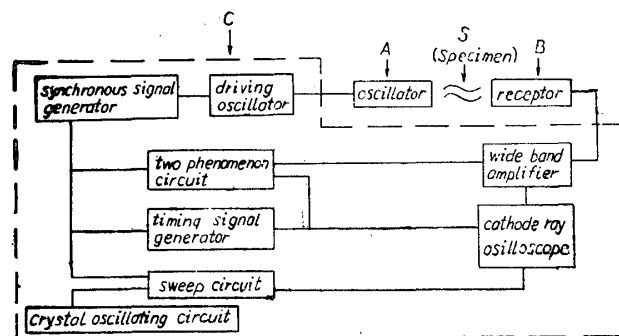
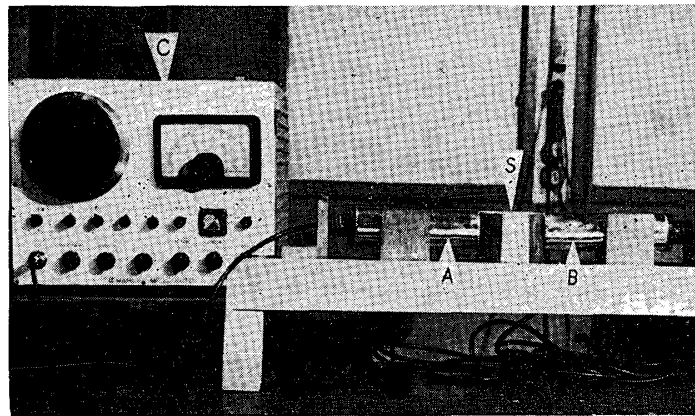


Fig. 1. Apparatus for measurement of velocity of ultra-sonic wave.

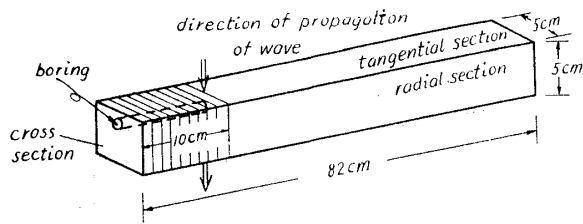


Fig. 2. Specimen tested the dependency of velocity on boring size in wood (Experiment 1)

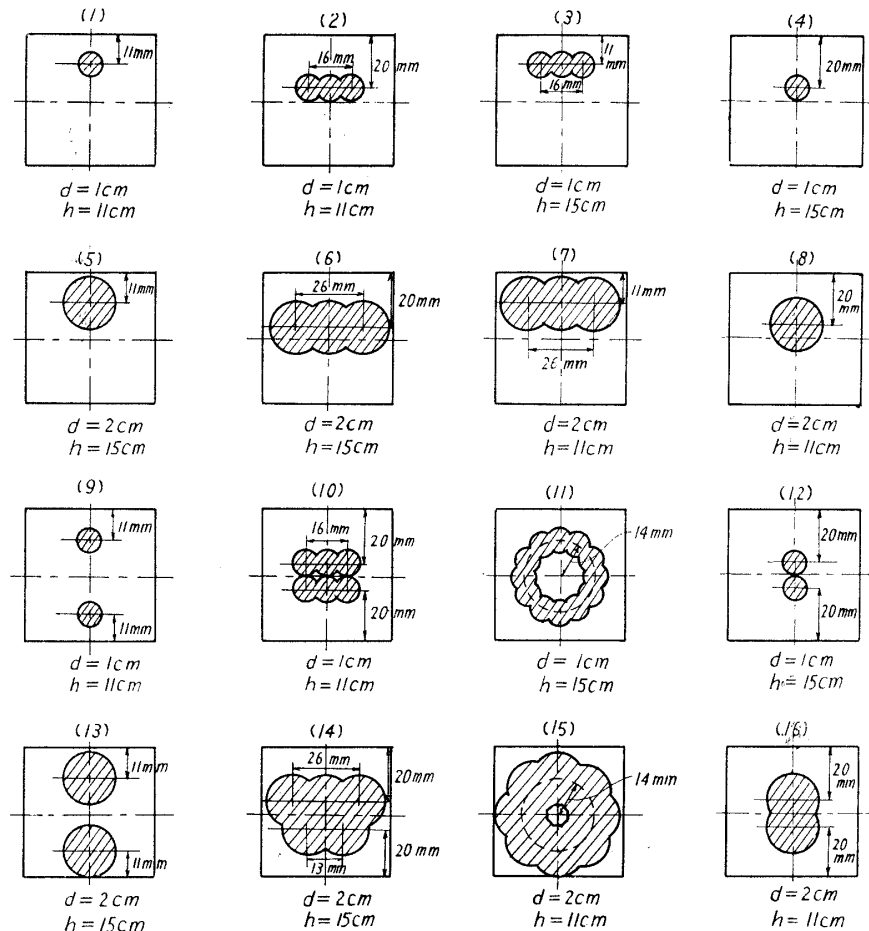


Fig. 3. Boring sizes in Experiment 1.

d=diameter of bore

h=depth of boring

含水率19%)を用い、その一端に木口断面が Fig. 3 のような形、径、位置の孔をドリルによつて図の深さにあけ、孔の先端部における半径方向に伝播する音波の速度を測定した。この実験は空孔が果して音速に影響するかどうかを分散分析により検定するためのもので、深さとして振動子、受信子の全面を孔の貫通するものと約半分で止まるものを選び、位置としては材の外に近い方と中心に近い方との片側と両側に孔があるようにし、各条件5本の試片を準備した。

さらに電柱などの下端に腐朽などによる空洞のある場合を想定し、音速測定後 Fig. 2 の斜線の部分をクランプ、片持梁として曲げ強度を測定した。この場合クランプによつて穿孔部に

変形がおこらないように、この部分に埋木を行なつた。もちろん無穿孔の角柱の音速、強度は基準として測定する。これによつて音速より強度を推定する基礎資料を得ようとした。

(B) 実験 2

主として音速に及ぼす空孔の形、大いさの影響を知るために、スギ（絶乾比重：0.34，含水率16%），アカマツ（*Pinus densiflora* SIEB. et ZUCC., 絶乾比重：0.46，含水率：15%），ブナ（*Fagus crenata* BLUME, 絶乾比重：0.65，含水率：15%）の Fig. 4 に示すような試片を用い、無穿孔状態で音速を測定後、音波の伝播方向とそれに垂直方向に両辺を持つ矩形の孔をあけ（Fig. 4 参照），両辺の比を一定に保ちながら，漸次その面積を増し，その都度音速を測定する。矩形孔の両辺の比は音速伝播方向の長さを a ，それに直角方向の長さを b として， $a/b=1/3, 1/2, 1/1, 2/1, 3/1$ の5段階をとり，繊維方向，半径方向，切線方向にそれぞれ伝播する音速の速度を測定した。

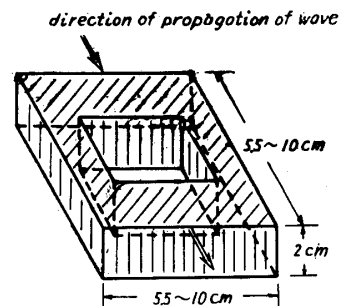


Fig. 4. Specimen tested the dependency of velocity on form of cave (Experiment 2).

試片の大いさは繊維方向の音速測定用として3樹種とも繊維方向約10 cm，木口断面8×2 cm，半径方向，切線方向の音速測定用として二方柱木取り，木口断面正方形（スギ：約7×7 cm，アカマツ：約5.5×5.5 cm，ブナ：約10×10 cm），繊維方向の長さ2 cmのものをを用い，二方向の音速を一つの試片で測定した。

I-3 腐朽の場合

つぎに完全な空孔でなく成分，組織の変化した腐朽材を取り上げ，それが音速に及ぼす影響を調べた。

(A) 表面腐朽

スギの辺材（気乾比重：0.39）より Fig. 5 に示す寸法の試片をとり，木口面および両端より3 cm までポリエステル樹脂を塗布，秤量後強制腐朽せしめた。腐朽菌はオオウズラタケ（*Corirolellus palustris*），腐朽期間は1，2，4週間である。この場合の腐朽は次の実験と異なり材の表面より始まる。

音速の測定は Fig. 5 に示すように菌に侵された部分の中央で半径方向に行なつた。なお比較のために何んら処理しない同一寸法の健全材はもちろん無菌状態の培養瓶中に上と同様期間放置した試片も測定に供し，菌以外による腐朽期間中の材の変化の音速に及ぼす影響を検討した。

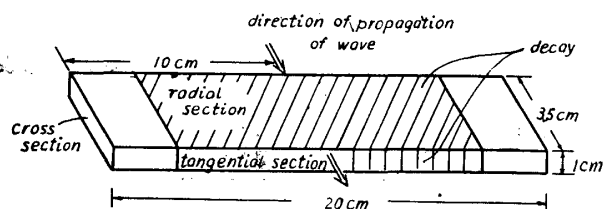


Fig. 5. Specimen tested the dependency of velocity on decay (outer-rot).

腐朽による重量減少を測定する必要上，音速測定はすべて（健全材を含めて）60℃で3日間乾燥後ただちに行なつた。したがつて試料の含水率は絶乾に近く，約2%であつた。

さらに以上の試片はすべて音速測定後スエーデン式曲げ試験機で中央集中荷重による曲げ強度を測定した。

(B) 内部腐朽

内部のみに腐朽のある場合を検討するためにブナ辺材（気乾比重：0.53，断面寸法4×4 cm）

に拡散注入法により表面より防腐剤 (JIS K 1550 1種4号) を注入後, Fig. 6 に示す厚さの試片を切り出すか, あるいは無処理試片を切り出して後, 木口面の中央にポリエステル樹脂を塗布し, 防腐剤 (JIS K 1550 1種3号) 中にその一端を浸漬, 防腐剤を浸透させるかして後, 前の実験と同様オオウズラタケにて強制腐朽せしめる。ただし後者の部分浸透の場合は腐朽前に樹脂を剝離した。内部腐朽の容積は拡散注入法による時は試料の切り出された位置の元の材の木口面からの距離によつて, 部分浸透法による時は試料の木口面に塗られた樹脂の面積 (防腐剤不浸透部分) によつて加減することができる。(なおこの実験にはスギ辺材も計画されたが, 防腐剤の浸透が良好で不浸透部分がほとんど起らず, したがつて腐朽もほとんどなく失敗した。)

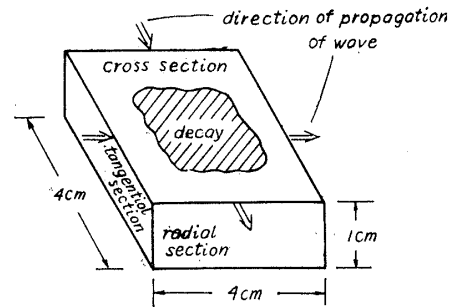


Fig. 6. Specimen tested the dependency of velocity on decay (inner-rot).

腐朽期間は1, 2, 3カ月で, 腐朽期間終了後ただちに Fig. 6 に示すように半径方向, 切線方向について音速を測定した。

比較のための健全材は防腐剤注入後, 腐朽試片に隣接した部分で取られた。音速の測定は腐朽材, 健全材とも 60°C 3日間乾燥後行なつたもので, 含水率は約2%であつた。

I-4 節の場合

木材組織中に密な組織の入つた場合としての節を考える。

節を含むスギ ($8 \times 8 \times 60\text{cm}$, 気乾比重: $0.35 \sim 0.36$), アカマツ ($8 \times 8 \times 60\text{cm}$, 気乾比重: $0.46 \sim 0.47$), プナ ($10 \times 10 \times 60\text{cm}$, 気乾比重: $0.62 \sim 0.67$) の角材 それぞれ3本ずつを選び, 繊維方向に5~10cm間隔で切断し, さらに縦に適当に2分するなどして節を含む部分と無節な部分にわけ, 繊維方向, 半径方向, 切線方向の音速を測定した。

ここに言う節は直径1cm以上で, 材を貫通しているか, その半分以上に達しているもので, 生節, 死節を含め抜け節は含まない。また節を含む試片はできるだけ節の容積を多く含むようにしたが, 健全な部分も多く含まれることはもちろんである。

II 実験結果および考察

II-1 空孔の場合

(A) 実験1

分散分析により音速および強度におよぼす空孔の径, 深さ, 形の影響を調べた結果, 1%の危険率で径および形が影響し, また同様の危険率で用いた音波の振動数によつて音速の値が異なるという得る。

空孔の大きさ, 形を含めて音速との関係を図示するために, 分析結果に空孔の深さの影響が認められないので木口面における空孔の面積と全断面積との比 (断面空孔率と呼んでおく) を考え, これと音速の関係を求めた。これを Fig. 7 に示す。音速の各測定値は相当のばらつきを示し, 50, 100 kc/s の場合は材自身の減衰のためにとくにいちじるしい。このことより木材の非破壊検査には 20 kc/s 程度が適当と考えられ, 空孔がある程度大きい時は木材特有のば

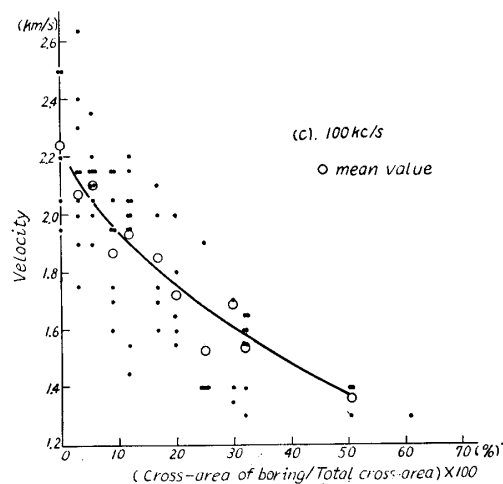
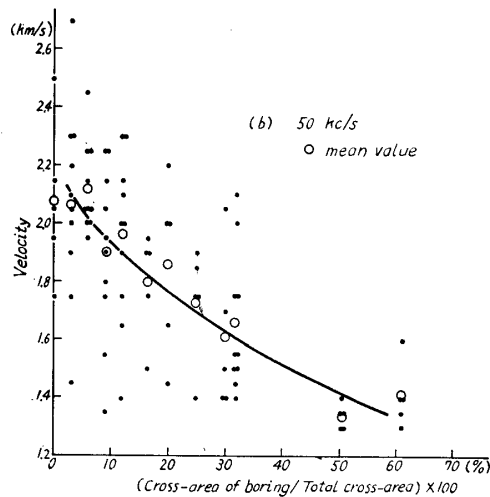
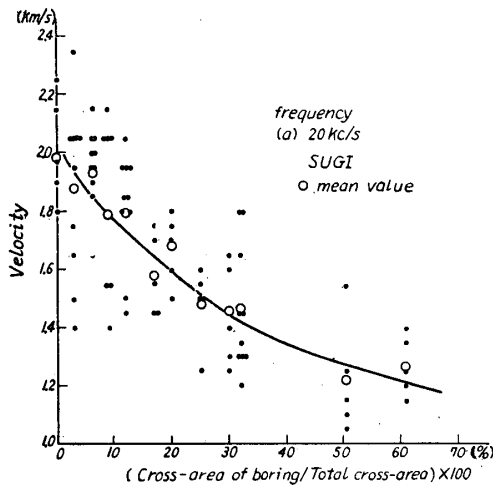


Fig. 7. Effect of boring on the velocity of wave propagating along radial direction of SUGI.

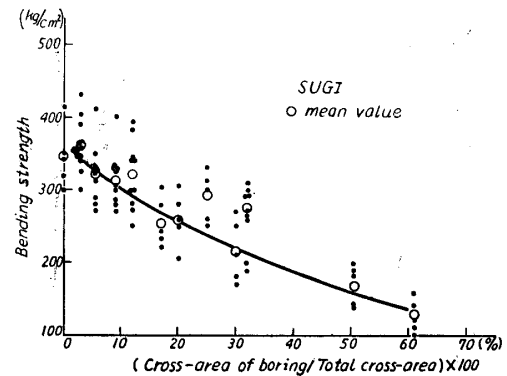


Fig. 8. Effect of boring on bending strength.

らつきを考慮してもその存在を十分その音速より検知しうる。

なお固定端に空孔を持つ柱の片持ちによるみかけの曲げ強度と断面空隙率との関係はFig. 8のようで、Fig. 7と同じ傾向を示す。ただし、同じ空孔断面積をもっている場合でも空孔の位置によつて断面2次モーメントが大きく異なるから、空孔の位置の異なるものを比較することはできないが、たとえば内部腐朽のみについて考えるならば音速から強度を推定することができるであろう。

(B) 実験2

各樹種別、音波の伝播方向別に20 kc/sの音速と空孔の容積率との関係を示したのが、Fig. 9~11である。図中の各点は3個の平均である。繊維方向、半径方向では空孔の形によつて音速の低下率がいちじるしく異なり、音速は伝播の途中に存在する空孔の全容積を示す指標となりえない。しかし切線方向では形の影響は比較的少ない。

つぎに音波の伝播方向に垂直な方向の空孔の巾（この実験では伝播方向に垂直なもの一方の方向では孔が貫通しているから、これは音波の垂直な空孔の断面積と同様の意味をもつ）で整理し、音速との関係を示したのがFig. 12~14である。この場合三方向とも両者の関係がほぼ1本の曲線で示されるようになり、音速はその伝播方向に垂直な空孔の断面積の大きさを示す

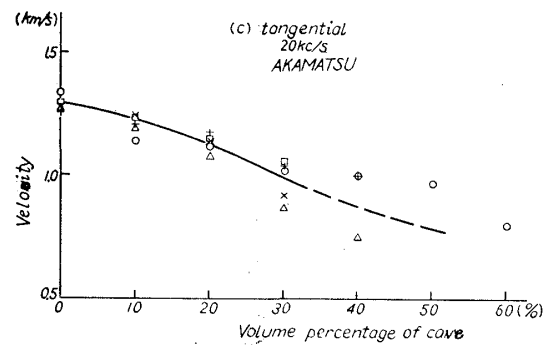
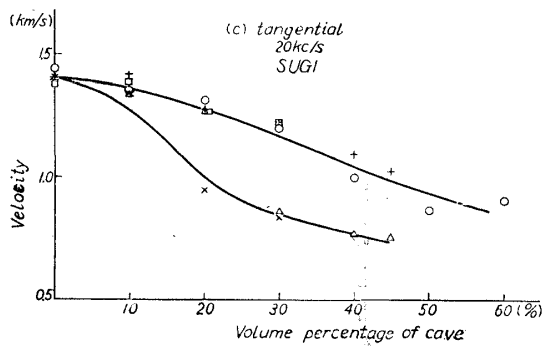
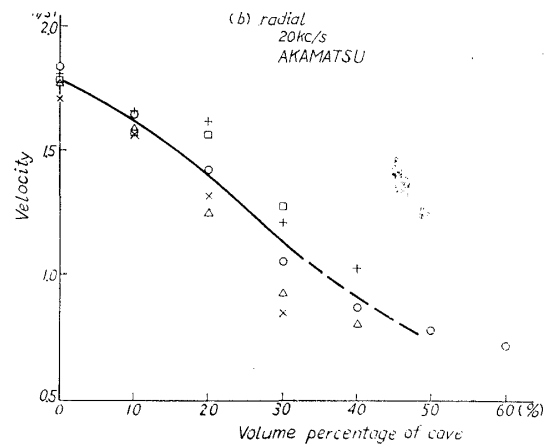
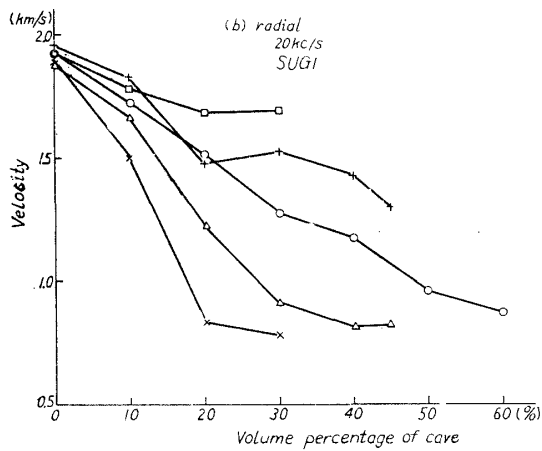
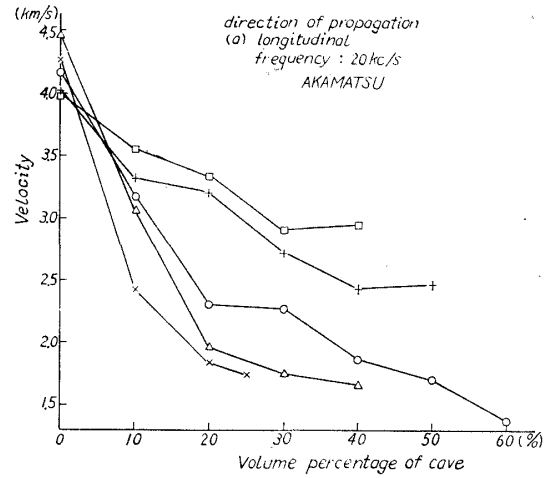
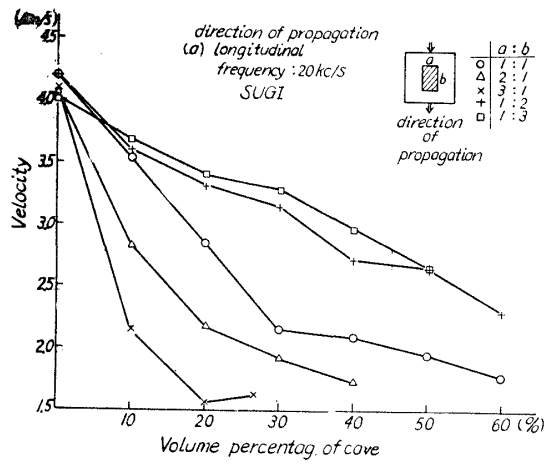


Fig. 9. Effect of the volume and size of cave on the velocity of wave in SUGI.

Fig. 10. Effect of the volume and size of cave on the velocity of wave in AKAMATSU.

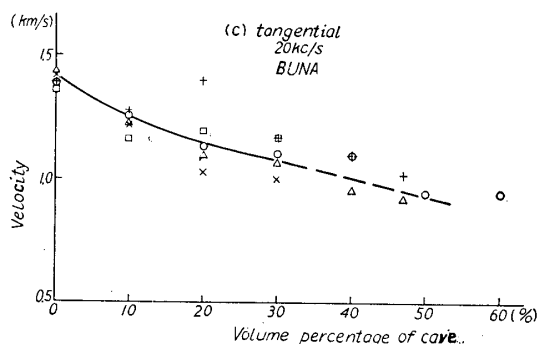
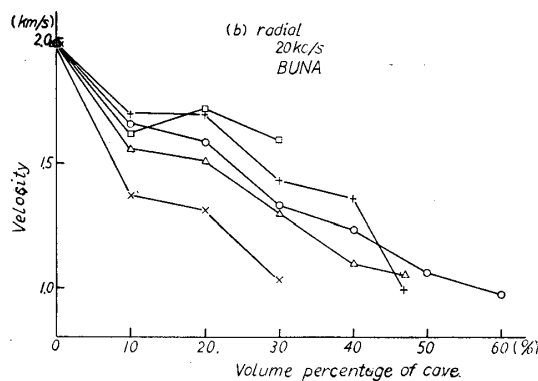
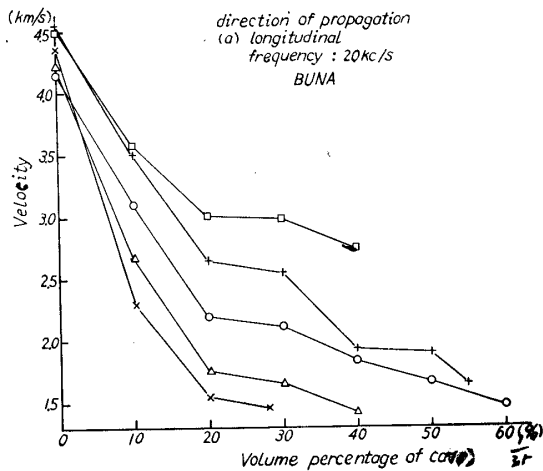


Fig. 11. Effect of the volume and size of cave on the velocity of wave in BUNA.

指標と考えられる。ただ上述の空孔の巾が振動子、受信子の径に近づくか、それ以上なるとくに半径、切線方向ではばらつきが目立ち始める。

やや球面的に拡がって伝播する音波の中、細胞実質を通って伝播したものが本実験における音速を決定するから、伝播方向に垂直な空孔の断面積の増加に伴って伝播距離が増大し、さらに繊維に直角に進行する速度は遅い (Fig. 16 参照) ことから上の結果は予想され、また空孔の巾が振動子、受信子の径以上になると、音波の減衰がはなはだしくなり、実験誤差が増大するためにその値はばらつくものと考えられる。

50, 100 kc/s による結果も 20kc/s の場合と同様であるが、この場合には減衰がはなはだしく、孔が大きくなつた場合には測定不能になる場合が多い。

空孔の実用的測定の一例として西本によつて測定された主としてフナクイムシ (*Teredo japonica* Clessin) による食害孔の結果を Fig. 15 に示す。この場合の孔は径 1 cm 未満の多数の小孔であり、上記のように断面積をもとめることは不可能のため、孔の全体積に対して音速がプロットされている。この場合も音速は食害度のよき指標となつている。なおこの試験には本実験の測定器を小型携帯用にしかも測定簡便に改良 (電源をアルカリ電池とし、さらに全重量の軽量化をはかり、伝播時間をカウンターによる直読とする) したものが用いられた。

つぎに音速の振動数依存性を見るために、本実験における穿孔前素材で測定された音速を各樹種別に振動数に対してプロットしたものを Fig. 16 に示す。各点は15個の平均を示すが、この傾向は個々の試料でも同様であつた。一般に固体中の音速 v はその物質のヤング係数を E 、密度を ρ 、 K を試料の形状と音波の種類によつて決まる定数とすれば

$$v = \sqrt{KE/\rho}$$

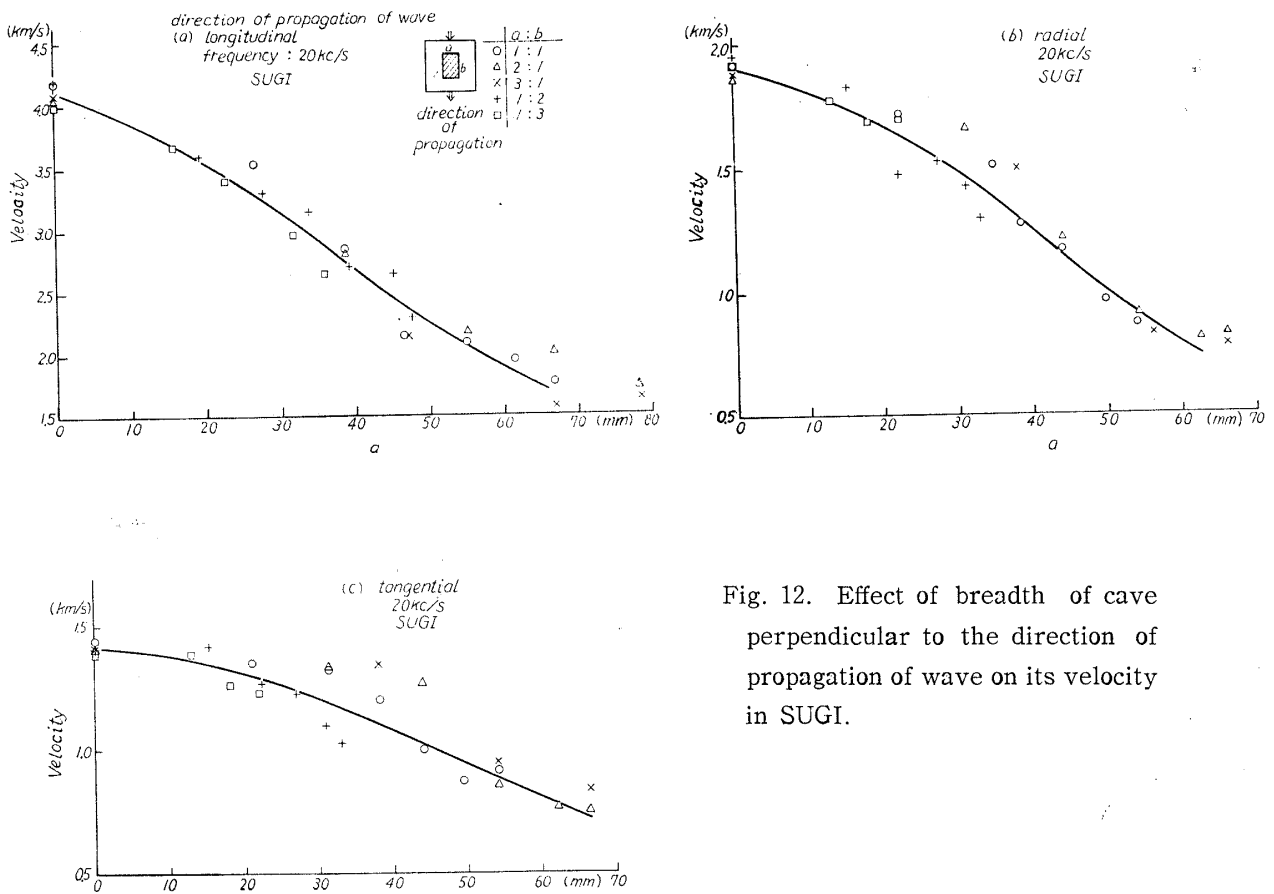


Fig. 12. Effect of breadth of cave perpendicular to the direction of propagation of wave on its velocity in SUGI.

にて示され、各個体では K , ρ は一定であるから Fig. 16 はヤング係数の振動数依存性に対する一資料と考えられる。

また Fig. 16 に明らかなように音波の伝播方向によつて音速にはいちじるしい差があるため、木材の非破壊検査によく使用される繊維に直角方向の音速についても年輪に対する角度を十分考えねばならない。

II-2 腐朽の場合

スギ辺材の表面腐朽およびブナ辺材の内部腐朽の結果をそれぞれ Fig. 17 および Fig. 19 に示す。腐朽の程度を示す指標として重量減少率を取り上げ、これに対して音速をプロットした。スギ辺材については測定した全振動数について示したが、ブナの場合は各振動数とも同じ傾向であるため 20 kc/s の場合のみを示した。

いずれの場合も木材の個体差によるばらつきが大きい、腐朽の程度の大きい場合は音速によつてその存在を検知しうる可能性は十分である。とくに内部腐朽の場合の方が測定器と材が接触がよく、音速のばらつきも少なく、判定に誤りが少ないと考えられる。

なおスギ辺材の表面腐朽実験において腐朽処理期間中の菌以外の材の変化による音速、曲げ強度の変化を検討した結果、これらは健全材と何ら変る所がないことを確認した。

また Fig. 18 に示すように表面腐朽による曲げ強度の変化はわずかの腐朽においてもその

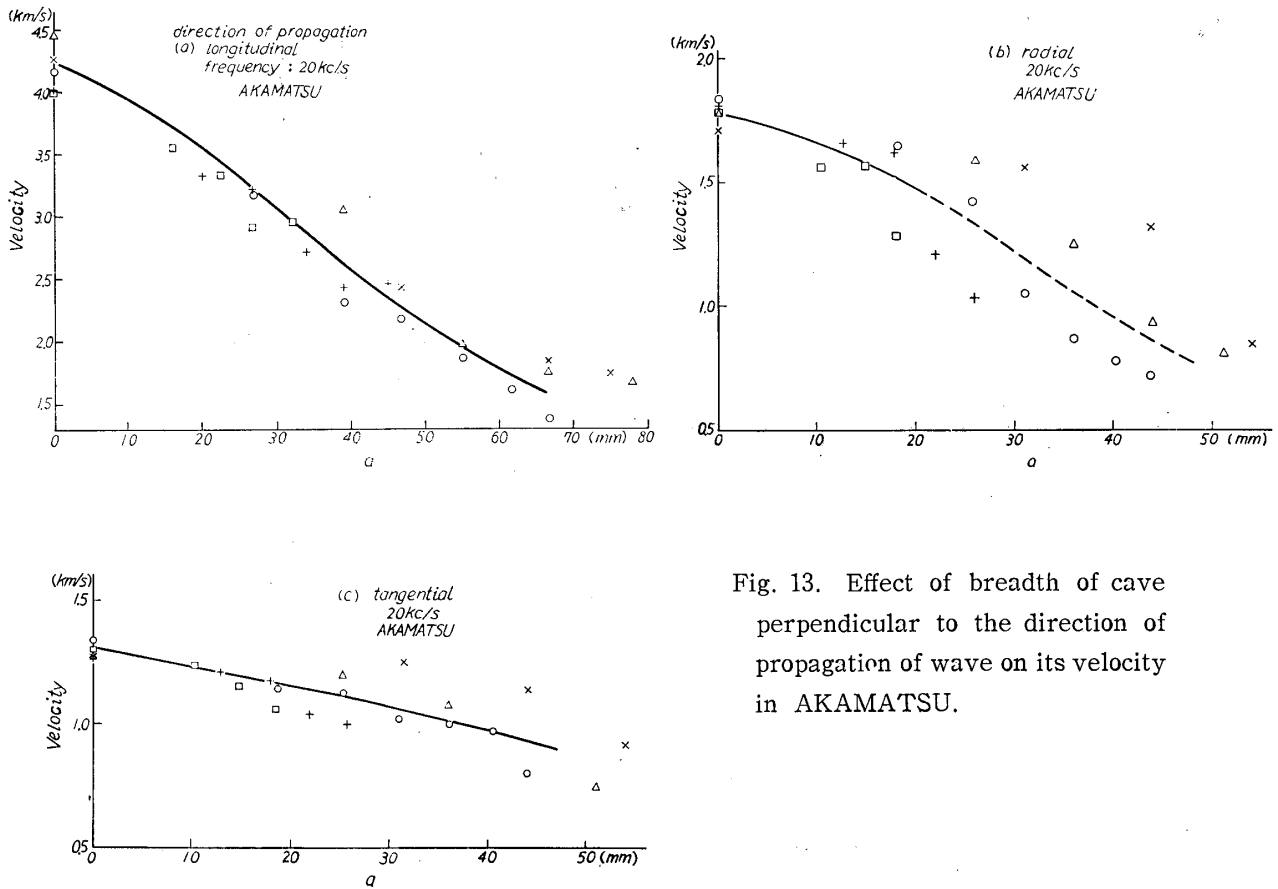


Fig. 13. Effect of breadth of cave perpendicular to the direction of propagation of wave on its velocity in AKAMATSU.

減少がいちじるしく、音速の腐朽による変化と様子がはなはだしく異なる。この場合腐朽が表面より進行することおよび強度はわづかな欠陥（とくに表面における欠陥）に大きく左右されることを考えればよく理解され、内部腐朽の場合の強度の腐朽度依存性は空孔の場合のように音速のそれに類似のものに近づくとも推測される。

II-3 節の場合

節の大きさ、形状など一定でないため、これの定量的表現は不可能である。したがって節材と無節材をそれぞれ一括してその音速を比較する。節材の繊維方向で4～6個、その他の方向で10～15個、無節材の繊維方向で4～9個、その他の方向で10～18個の平均を樹種別、測定振動数別に示したのが Table 1 である。

分散分析の結果によれば音速は樹種および振動数によつて影響されるとともに節材と無節材の間に差があることを示しているが、相当大きな節が存在している場合でも空孔、腐朽の場合ほど音速は大きく変化しないため、実用的な意味での音速による節の検出は不可能である。

Table 1 で明らかなように節による音速の変化は繊維方向で節材が低く、半径方向で節材が高く、切線方向ではほとんど変化がない。節の繊維方向はほぼ半径方向に平行、繊維方向、切線方向にはほぼ垂直であることを考えあわせるとこの変化はよく理解されるであろう。

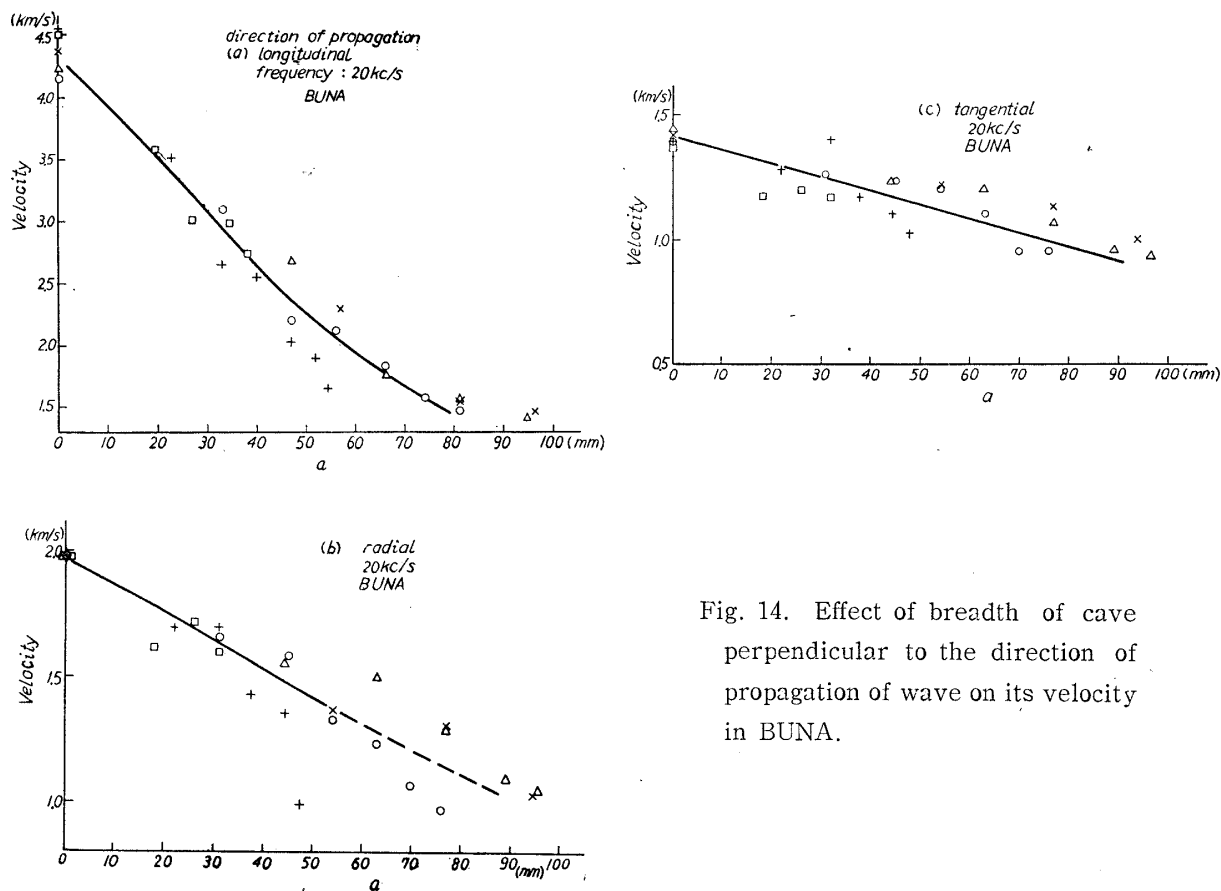


Fig. 14. Effect of breadth of cave perpendicular to the direction of propagation of wave on its velocity in BUNA.

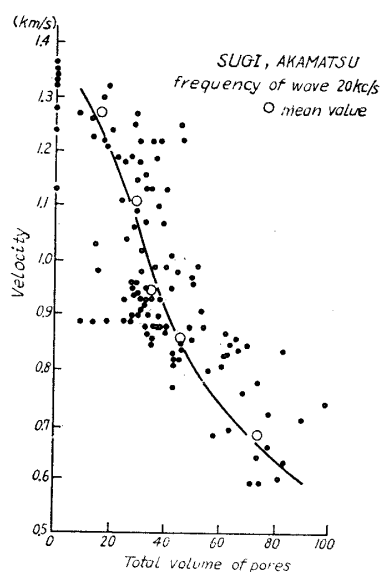


Fig. 15. Relation between velocity of wave and total volume of small pores which are invaded by *Teredo japonica* CISSIN (by K. NISHIMOTO).

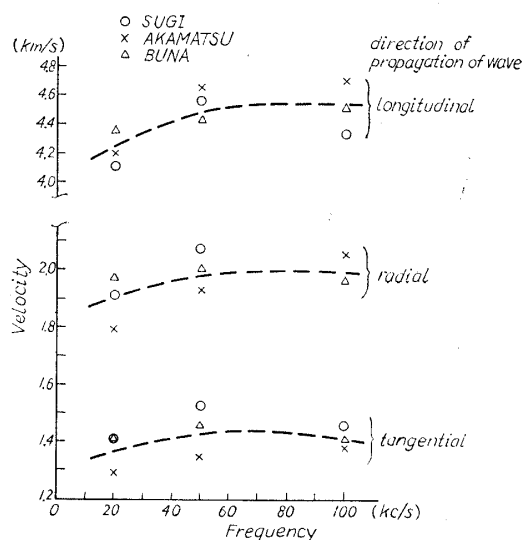


Fig. 16. Relation between velocity and frequency of wave propagating in wood which has no defect.

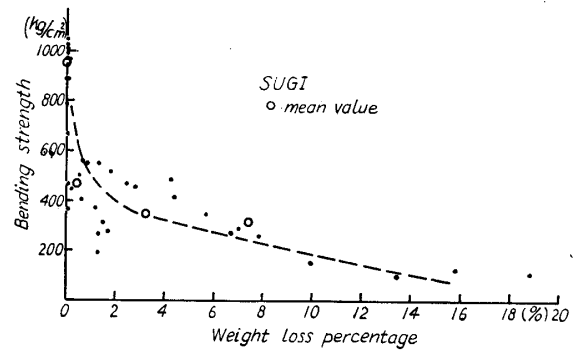
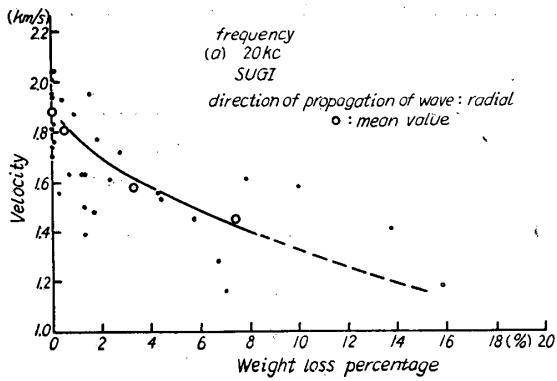


Fig. 18. Effect of decay on bending strength.

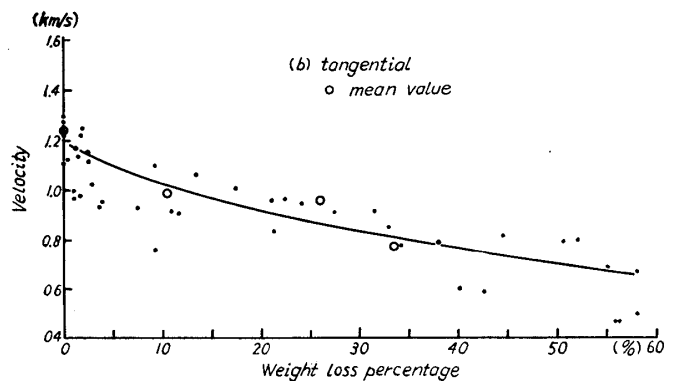
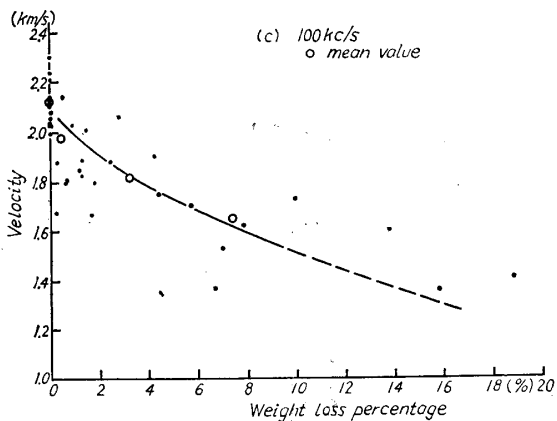
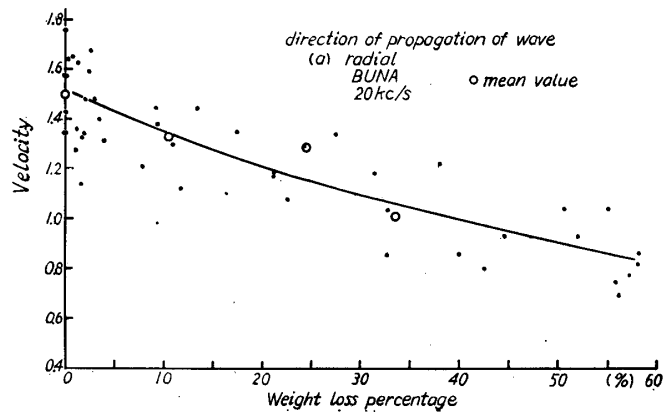
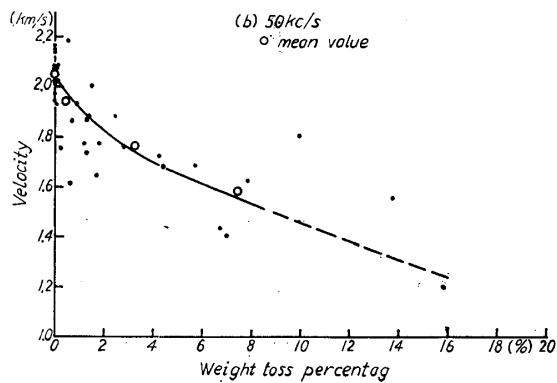


Fig. 17. Effect of decay (outer-rot) on the velocity of wave.

Fig. 19. Effect of decay (inner-rot) on the velocity of wave.

Table 1. The velocity of wave propagating in a specimen with a knot or without knot.
Direction of propagation
(a) longitudinal

Frequency (kc/s)	20		50		100	
	with a knot (km/s)	without knot (km/s)	with a knot (km/s)	without knot (km/s)	with a knot (km/s)	without knot (km/s)
SUGI	3.63	3.76	3.89	4.03	3.85	4.10
AKAMATSU	3.72	4.29	4.58	4.79	4.12	4.82
BUNA	3.76	4.15	4.37	4.61	4.27	4.77

(b) radial

Frequency (kc/s)	20		50		100	
	with a knot (km/s)	without knot (km/s)	with a knot (km/s)	without knot (km/s)	with a knot (km/s)	without knot (km/s)
SUGI	1.92	1.72	2.24	1.89	2.22	1.86
AKAMATSU	1.82	1.67	2.10	1.87	2.11	1.87
BUNA	1.75	1.80	2.05	1.97	1.99	1.97

(c) tangential

Frequency (kc/s)	20		50		100	
	with a knot (km/s)	without knot (km/s)	with a knot (km/s)	without knot (km/s)	with a knot (km/s)	without knot (km/s)
SUGI	1.51	1.44	1.66	1.55	1.53	1.57
AKAMATSU	1.41	1.53	1.61	1.61	1.64	1.54
BUNA	1.44	1.39	1.77	1.60	1.67	1.57

摘 要

木材の非破壊検査法の一つとして材中での超音波の速度を測定することにより、木材の内部欠陥検出の可能性を確かめるために、主としてスギ、ブナあるいはアカマツ乾燥材を用い、空孔、腐朽、節による振動数 20, 50, 100 kc/s の縦波の音速の変化を実験的に求めた。その結果を要約すれば次の通りである。

1. 空孔の場合は音波の伝播方向に垂直な空孔の断面積の増加に伴なつて音速は減少し、木材の個体差によるばらつきを考慮して比較的大きな空孔の存在を検知しうる。
2. 腐朽の場合は腐朽に伴なう材の重量減少率が増加するとともに音速が減少し、音速によるある程度進んだ腐朽部の検出は十分可能となる。
3. 節による音速の変化は音波の伝播方向が繊維方向のときは減少、半径方向のときは増加

し一応差を示すが、その差がわづかであるため実用的な検出は不可能である。

4. 振動数の増加に伴なつて健全材でも音波の減衰が大きく、音速の値も誤差が大きくなるため、本実験に用いた振動数範囲では 20 kc/s が最適である。なお用いる振動数を変化せしめると得られる音速も変化することは注意を要する。

5. 木材の基準三方向によつて音速が異なるため、音速による欠陥の検出に際してはその方向に十分注意が必要である。

Summary

In order to establish a non-destructive test for wood, I investigated the variation of velocity of ultra-sonic wave accompanied with defects in it.

Frequencies of wave used here were 20, 50 and 100 kc/s.

First, the effect of the form and size of a boring or a cave on the velocity of wave were tested with air-dried Sugi (*Cryptomeria japonica* D. DON), Akamatsu (*Pinus densflora* SIEB. et ZUCC.) and Buna (*Fagus crenata* BLUME). The velocity of wave propagating along the radial, tangential and fiber direction decreased with the increase of the size of the defect, especially of its area of cross section perpendicular to the direction of propagation of wave. See Figs. 7~14. A comparatively large cave or a large number of small pores in wood (cf Fig. 15) may be, therefore, detected by the measurement of velocity.

Secondly, the effect of decay on the velocity were tested. The velocity of wave propagating along the radial direction of wood decreased with the increase of weight loss percentage in outer-decayed Sugi and inner-decayed Buna, and the one propagating along the tangential direction did so in inner-decayed Buna, too. See Figs. 17 and 19. In this case, the velocity was measured after the specimen had been dried during three days at 60°C. A comparatively large decay in wood may be, therefore, detected by the measurement of velocity.

Finally, the effect of knots on the velocity were tested with air-dried Sugi, Akamatsu and Buna. The velocity in a specimen along its fiber with a knot was lower than the one in a specimen without knot, while the velocity in the former specimen along radial direction was higher than the one in the latter. See Table 1. But their differences were very small and then the detection of knot by the velocity is impossible in a practical use.

In these tests, the velocities were most correctly evaluate at 20 kc/s, because the damping of wave in wood increased with the increase of its frequency.

It must be given an attention to the fact that the different values of velocity were gained by different frequencies or along different directions of wood.

引 用 文 献

- 1) 布施五郎, 白石信夫, 西本孝一, 木材研究, No. 26, 49 (1961).
- 2) 北海道電力技術研究所の資料 (1960) による.
- 3) MILLER, D. G., For. Prod. J., **9**, 243 (1959).
- 4) 新保 勇, 奥村芳巳, 溝口 明, 電気試験所彙報, **17**, 665 (1953) .
- 5) 内藤 正, 新保 勇, 奥村芳巳, 溝口 明, 電気試験所彙報, **17**, 669 (1953) .
- 6) RICHARDS, D. B., J. For., Prod. Res. Soc., **2**, No. 4, 25 (1952).
- 7) HOYLE S. J., For. Prod. J., **11**, 251 (1961).